

# METHOD AND DEVICE FOR MANUFACTURING ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

Publication number: JP2003077662

Publication date: 2003-03-14

Inventor: KIDO JUNJI

Applicant: KIDO JUNJI

Classification:

- International: C23C14/12; C23C14/24; H05B33/10; H05B33/14;  
C23C14/12; C23C14/24; H05B33/10; H05B33/14;  
(IPC1-7): H05B33/10; C23C14/12; C23C14/24;  
H05B33/14

- european:

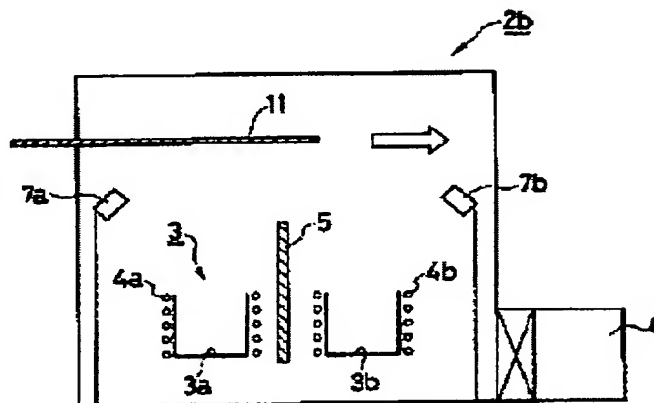
Application number: JP20020178461 20020619

Priority number(s): JP20020178461 20020619; JP20010190219 20010622

Report a data error here

## Abstract of JP2003077662

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To solve problems in a conventional manufacturing device that accurate control of a component ratio changing in the direction of thickness of a film is difficult and production of uniform products is impossible because, for example, a difference in light emitting colors occurs in each product. **SOLUTION:** A manufacturing method for an organic electroluminescent element having an inclined organic layer composed of a plurality of organic compounds of at least one layer between opposing anode electrode and cathode electrode and having different mixture ratios in the direction of thickness is provided to manufacture the inclined organic layer by moving a substrate 11 relatively for a plurality of evaporation sources 3 of the organic compound arranged across a partition plate 5 in the same vacuum film formation chamber 2. Moreover, a manufacturing device 1 for the organic electroluminescent element is provided to enable accurate control of a component ratio.



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2003-77662  
(P2003-77662A)

(43) 公開日 平成15年3月14日 (2003.3.14)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターム(参考)
H 0 5 B 33/10		H 0 5 B 33/10	3 K 0 0 7
C 2 3 C 14/12		C 2 3 C 14/12	4 K 0 2 9
	14/24	14/24	C
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	A

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2002-178461(P2002-178461)  
(22) 出願日 平成14年6月19日(2002.6.19)  
(31) 優先権主張番号 特願2001-190219(P2001-190219)  
(32) 優先日 平成13年6月22日(2001.6.22)  
(33) 優先権主張国 日本(J P)

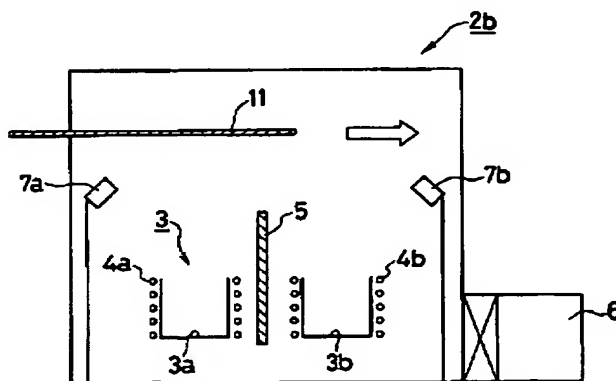
(71) 出願人 501231510  
城戸 淳二  
山形県米沢市林泉寺3-12-16  
(72) 発明者 城戸 淳二  
奈良県北葛城郡広陵町馬見北9-4-3  
(74) 代理人 100062225  
弁理士 秋元 輝雄  
Fターム(参考) 3K007 AB18 DB03 FA01  
4K029 BA62 BB00 BC07 BD00 CA01  
DA10 DB12 DB14

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法および製造装置

(57) 【要約】

【課題】 従来の製造装置では、膜の厚み方向に変化する成分比を正確に制御するのが困難であり、例えば製品毎に発光色の相違を生じるなどして、均一な製品の生産が不可能である問題点を生じていた。

【解決手段】 本発明により、対向する陽極電極と陰極電極の間に少なくとも1層の複数の有機化合物から構成され、混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であり、同一の真空成膜室2内に仕切り板5を挟んで配置した複数の有機化合物の蒸発源3に対して相対的に基板11を移動させることにより傾斜有機層を作製する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法、および、製造装置1とすることで、成分比の正確な制御を可能とし課題を解決するものである。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 対向する陽極電極と陰極電極の間に少なくとも1層の二種以上の有機化合物から構成され、混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、同一の真空成膜室内に仕切り板を挟んで配置した複数の有機化合物の蒸発源に対して相対的に基板を移動させること、および/または同一の真空成膜室内における基板の相対的な移動方向において蒸発量が異なる複数の蒸発源を備えることにより傾斜有機層を作製することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項2】 キャリア輸送性の異なる二種以上の有機化合物で上記傾斜有機層を構成することを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項3】 第1電極および第2電極と、両電極間に挟まれた複数の有機物化合物材料からなりその混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を含む有機化合物層を備え、電極から注入した電流により有機化合物層から発光する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置であって、少なくとも仕切り板を挟んで配置した第1および第2の蒸発源部と、蒸発源に対して相対的に移動可能な基板とを備え、上記仕切り板は、第1の蒸発源から飛散する第1蒸発材料の飛散路、および第2の蒸発源から飛散する第2蒸発材料の飛散路の双方の飛散路が重なる領域に突出する長さで、且つ、第1および第2の蒸発材料の双方が基板に到達可能な長さを有し、上記第1の蒸発源および第2の蒸発源から基板上に同時に有機材料を飛散させて、基板表面に第1の蒸発材料および第2の蒸発材料の混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を作製できる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置。

【請求項4】 第1電極および第2電極と、両電極間に挟まれた複数の有機物化合物材料からなりその混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を含む有機化合物層を備え、電極から注入した電流により有機化合物層から発光する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置であって、蒸着物出射口となる孔と蒸発源側から基板側に向かって該孔の周囲から拡開している指向範囲制御部とを備えた少なくとも2つの蒸発源と、蒸発源に対して相対的に移動可能な基板とを備え、上記蒸発源は、第1の蒸発源から飛散する第1蒸発材料の飛散路、および第2の蒸発源から飛散する第2蒸発材料の飛散路の双方の飛散路が重なっており、上記第1の蒸発源および第2の蒸発源から基板上に同時に有機材料を飛散させて、基板表面に第1の蒸発材料および第2の蒸発材料の混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を作製できる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置。

【請求項5】 第1電極および第2電極と、両電極間に挟まれた複数の有機物化合物材料からなりその混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を含む有機化合物層を備

え、電極から注入した電流により有機化合物層から発光する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置であって、蒸着物出射口となる複数の孔を備えた少なくとも2つの蒸発源と、蒸発源に対して相対的に移動可能な基板とを備え、上記蒸発源は、第1の蒸発源から飛散する第1蒸発材料の飛散路、および第2の蒸発源から飛散する第2蒸発材料の飛散路の双方の飛散路が重なり、且つ、各蒸発源に設けられている複数の孔は上記基板の移動方向と略平行に並設されていると共に、少なくとも一つの孔の大きさが他の孔の大きさと異なり、上記第1の蒸発源および第2の蒸発源から基板上に同時に有機材料を飛散させて、基板表面に第1の蒸発材料および第2の蒸発材料の混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を作製できる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置。

【請求項6】 上記第1の蒸発源部、第2の蒸発源部および仕切り板の周囲を囲み、加熱制御可能な囲み板が設置されていることを特徴とする請求項3から請求項5の何れかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は有機エレクトロルミネッセンスデバイス（以後、有機EL素子と略称する）における有機層の製造方法および製造装置に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 一般に、低分子材料を用いた有機EL素子は電極間に有機薄膜層を挟んだ構造である。これまで、この有機層の構造として幾つか提案されている。代表的なものはITO（Indium tin oxide）からなる陽極を形成したガラス基板上に真空蒸着法にてホール輸送性材料層を蒸着し、その後、同じ真空装置内にて蒸発源をホール輸送性材料から電子輸送性材料に変え、電子輸送性材料層を蒸着して積層構造の有機層を形成する。次に低仕事関数の金属材料からなる陰極を形成した有機EL素子があり、電極から電荷を注入すると有機層から発光が得られる。

【0003】 また、有機層における積層構造の界面をなくすべく上記各層の有機材料を混ぜて、成分の濃度勾配をもたせた構造（以降、傾斜構造という）の提案がある。たとえば、US-PAT5853905、US-PAT5925980、US-PAT6114055、US-PAT6130001、特開2001-23776には傾斜構造を備えた有機EL素子10（図10参照）が記載されている。

【0004】 これらの特許において、濃度勾配を持たせた層（以後、傾斜有機層という）は、ホール輸送性材料と電子輸送性材料との混合比を厚み方向において変化させている。例えば、特開2001-23776によると、図10に示すように、ガラスなどの基板11上に敷設された陽電

10

20

30

40

50

極12と、陰電極14との間に挟まれる有機層13が傾斜有機層のみからなる単層構造であり、典型的には図11のような濃度勾配を有しており、傾斜有機層から発光が生じている。

【0005】また、これらの傾斜構造を備えた有機EL素子10を作製するには、従来は図17のように基板挿入室91、複数の成膜室92、および基板取り出し室93と、異なる室間で基板を移動させるための搬送アーム99を中央に備えた装置を用いて作製する。傾斜有機層は、図18のような基板回転機構95を備えた成膜室92内に複数の蒸発源94を備えた製造装置90を用いて作製する。たとえば、陽電極12となる薄膜の形成された基板11を製造装置90にセットし、自転させる。次に、真空蒸着法により基板11上に有機層13の薄膜を作製する。各蒸発ルツボ94a、94bにはそれぞれホール輸送性材料と電子輸送性材料が充填されている。濃度勾配をつけるために、電子輸送性材料は時間の経過とともに蒸発速度が速くなるようにヒーター96bなどを制御し、ホール輸送性材料は時間の経過とともに蒸発速度が遅くなるようにヒーター96aなどを制御して各々の材料を同時に蒸着する。なお、蒸発速度の制御は、水晶振動子を用いた膜厚モニター97a、97bを用いて行う。尚、図中に符号98で示すものは排気装置である。

#### 【0006】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、このような装置を用いて傾斜構造を備えた有機EL素子を作製する場合には、次のような問題点があった。

【0007】問題点1：膜の厚み方向に変化する2つの成分比を制御する必要があるため、再現性が悪く、可変の蒸発速度制御が困難である。

問題点2：膜厚を変更する場合、経時変化する蒸発速度の条件出しに多くの時間が必要となる。

問題点3：膜面方向に成分比を均一にするために、基板を回転させるための機構が必要となり、成膜時間以外に、回転、および、基板交換の時間が必要である。

【0008】本発明は、以上のような問題点を解決すべく、比較的簡単な構成の装置により、安定して傾斜構造を備えた有機EL素子を作製できる方法および製造装置を提供すること目的としている。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明は、対向する陽電極と陰電極の間に少なくとも1層の複数の有機化合物から構成され、混合比が厚さ方向で異なる傾斜有機層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、同一の真空成膜室内に仕切り板を挟んで配置した複数の有機化合物の蒸発源に対して相対的に基板を移動させること、および／または同一の真空成膜室内における基板の相対的な移動方向において蒸発量が異なる複数の蒸発源を備えることにより傾斜有機層を作製する

ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法および製造装置等を提供することで、いわゆる傾斜有機層を備えた有機EL素子を安定して作製することができる。

#### 【0010】

【発明の実施の形態】以下、この発明の好適な実施形態を図1から図5を参照しながら、詳細に説明する。図1は本発明による好適な傾斜型構造の有機EL素子10

(図10を参照)の製造装置1の一実施形態を示す。本発明において傾斜型構造の有機EL素子10は、いわゆるインライン方式の真空成膜装置を用いて作製する。インライン方式の真空成膜装置は、一定速度で基板11が移動する機能を有し、複数の成膜室2により構成されている。少なくとも成膜室の1室は、蒸発源3が2つ以上あり、蒸発源3の間に濃度勾配を制御するための仕切り板5が置かれた真空蒸着装置により構成される。

【0011】図面において符号11は基板で、図面左から右方向に向かって所定の速度で移動する。図では第1成膜室2aから第4成膜室2dまでの4つの成膜室を備えた例を示し、各成膜室2(a~d)の上部に基板11が搬送される搬送室2eが設けられている。また、これらの空間2a~2eは全て真空状態としている。

【0012】各成膜室2(a~d)には蒸発源3を備えており、搬送されてくる基板11表面に成膜する。蒸発源3は、有機EL素子の構造によって異なり、例えば第1成膜室2aにてホール注入層、第2成膜室2bにおいて傾斜有機層、第3成膜室2cにおいて第1陰極材料、第4成膜室2dにおいて第2陰極材料をそれぞれ成膜する。各成膜室において成膜する材料および成膜室の数は、作製しようとする有機EL素子構造に応じて適宜選択する。

【0013】図2は傾斜有機層を成膜する第2成膜室2bの概略図である。第2成膜室2bの下部には、2つのルツボなど蒸発源3a、3bと、蒸発源3(a、b)の間に配置した仕切り板5が設置されており、ルツボ蒸発源の周りには各ルツボ蒸発源の温度を制御するヒーター4a、4bが設けてある。なお、6は排気ポンプで、バルブを通して成膜室内の圧力を所定値に制御可能なものとしている。

【0014】本発明第1の実施形態の有機EL素子製造装置は上記のような構成とされており、2つのルツボ蒸発源3a、3bから同時に有機材料を蒸着することで、搬送されている基板11表面に傾斜有機層を再現性よく成膜することができる。

【0015】ここで、成膜される傾斜有機層と仕切り板5との関係について説明する。仕切り板5の高さの調整により、図3のような3種類(タイプ1、2、3)の傾斜構造を形成できる。タイプ1、タイプ2、および、タイプ3は、それぞれ図4A、4B、および4Cのような仕切り板5を蒸発源の間に設置することにより形成でき

る。尚、図2中に符号7(a, b)で示すものは膜厚モニタであり、図4中に符号Zで示すものは仕切り板5の高さに応じて変化する成分混合の境界線である。

【0016】また、たとえば、タイプ2の傾斜構造を形成する装置である図4Bにおいて、防着板8の開口面積を小さくすることにより、タイプ1の傾斜構造を形成できる。膜厚の制御は、蒸発速度および基板11の搬送速度を制御することにより容易に行うことができる。

【0017】このような仕切り板5を設けた成膜室と一定方向に移動する基板11とを備えた有機EL素子製造装置1とすることで、作製しようとする傾斜構造の有機EL素子を再現性よく、しかも簡単に作製することができる。特に、仕切り板5の長さ(仕切り板と基板との距離)、防着板8の開口面積に応じて、蒸発源3の一定蒸発速度と基板11の搬送速度を制御することで、様々な傾斜構造の有機EL素子を得ることができる。

【0018】なお、本実施形態において、蒸発源3はルツボに限らず点蒸発源、線蒸発源、面蒸発源のいずれでもよい。また、蒸発源部の仕切り板5で仕切られた領域(図面右側または左側)に置く蒸発源は、1つに限定されず、2つ以上の蒸発源が配置されていてもよい。また、1つの成膜室内において蒸発源部の仕切り板5で仕切られた領域は、2つの領域に限定されず、3つ以上の領域に仕切られていてもよい。たとえば、3つの領域に仕切られた成膜室の場合には、図5(A)のような配置となる。更に言えば、仕切り板5の形状は板状に限らず、例えば図5(B)に示すように蒸発源部の周囲を略筒状に囲む形状とした囲周板15としても良い。

【0019】次に別の実施形態について説明する。なお、先の実施形態と同一の機能を有する箇所は同一の符号を付し詳細な説明を省略する。この実施形態においては、先の蒸発源部の周囲に図6のような加熱した蒸発源3を囲む囲み板9を備えている。囲み板9は、蒸発源3a, 3bの周囲を囲む円筒状のステンレスなどの金属や、セラミック材料からなる板で、蒸発源3から適宜の距離を離して設置する。また、該囲み板9は図示しない温度制御装置により所定の温度に制御可能なものとしている。

【0020】蒸発源から蒸発した有機材料は、成膜室2内においてほぼ放射状に広がって飛んで、基板11等に付着する。その際、上記囲み板9をその飛散路内で、かつ、基板への蒸着の妨げとならない位置、例えば、真空装置の壁面に向かって飛ぶ飛散路を覆う見込み角度を覆う領域に設置すると、蒸発源3から飛んできた有機材料の一部は上記囲み板9にも付着する。

【0021】このとき、囲み板9の温度を高温に制御すると、この囲み板9に付着した有機材料が再蒸発して基板11に付着するので、材料の使用効率が著しく向上する。さらに真空成膜室の壁面に付着する利用されない有機材料の絶対量が減少する。このことは壁面に付着し

て、微粒子ゴミの発生原因となる有機材料が低減されるので、微粒子ゴミが基板11に付着すること起因する不良発生を効果的に予防することになり歩留まり向上と低コスト化をはかることができる。

【0022】なお、前記囲み板9の温度は、蒸発材料の沸点、または、昇華点より高く、使用する材料が変性する温度より低い温度に制御すれば良い。蒸発材料は、一般に有機EL素子に使用されている材料全般のいずれも用いることができ、積層構造、単層構造、傾斜構造の有機層のいずれを成膜する有機材料にも適用できる。

【0023】次に、第3の実施形態について説明する。なお、先の実施形態と同一の機能を有する箇所は同一の符号を付し詳細な説明を省略する。上述した実施形態においては同一の真空成膜室内に仕切り板を挟んで配置した複数の有機化合物の蒸発源に対して相対的に基板を移動させることにより傾斜有機層を作製しているが、本実施形態においては、蒸発源からの蒸発物の飛び出し方向に指向性を与えることにより、傾斜有機層を作製している。

【0024】図12は本発明による好適な傾斜型構造の有機EL素子10(図10を参照)の製造装置の一実施形態を示す。本実施形態においても傾斜型構造の有機EL素子10をいわゆるインライン方式の真空成膜装置21を用いて作製する。一定速度で基板11が移動する機能を有し、複数の蒸発源30を有する成膜室22と、排気装置26により構成されている。また、成膜室の前後にロードロック室28a、28bが設けられている。蒸発源30は飛び出し方向に指向性を持って蒸発物が飛散すると共に、少なくとも2つの蒸発源からの蒸発物が基板11上に同時に成膜するものとされている。

【0025】図面において符号11は基板で、図面左から右方向に向かって所定の速度で移動する。図ではロードロック室28a、成膜室22およびロードロック室28bの上部に基板11が搬送される搬送室などが設けられている。また、成膜室22は図では仕切り板25(a, b)により第1成膜室22a、第2成膜室22bおよび第3成膜室22dの3つの成膜室を備えた例を示している。なお、これらの空間は排気装置26により全て真空状態としている。

【0026】図では成膜室22に第1蒸発源30aから第4蒸発源30dまでの4つの蒸発源30(a, b, c, d)を備えており、搬送されてくる基板11表面に成膜する。各蒸発源30は、有機EL素子の構造によって蒸発範囲が異なる。例えば第1成膜室22aでは蒸発源30aによりホール注入層、第2成膜室22bでは蒸発源30bおよび蒸発源30cにより傾斜有機層、第3成膜室22dでは蒸発源30dにより陰極材料をそれぞれ成膜する。各成膜室において成膜する材料、蒸発源の数および成膜室の数は、作製しようとする有機EL素子構造に応じて適宜選択する。

【0027】図13は傾斜有機層を成膜する第2成膜室22bの概略図である。第2成膜室22bの下部には、2つの蒸発源30b、30cが所定の照射範囲となるように指向性を持って蒸発物を飛散可能となるように所定の角度に設置しており、各蒸発源の周りには蒸発源の温度を制御するヒーター34b、34cが設けられている。なお、26は排気ポンプで、バルブを通して成膜室内の圧力を所定値に制御可能なものとしている。また、蒸発源30は図14に示すように筒体31と、筒体31の下方内部に蒸発物を交換可能にセットする収納部33と、所定の量の蒸発物を飛散可能な所定の大きさとした細長矩形のスリット32a及び所定の角度 $\alpha$ でスリット32aの周囲に拡開したV型形状の指向範囲制御部32bとが形成された開口部32と、周囲に設けられた蒸発源30の温度を制御するヒーター34とにより構成され、好適にはカーボンにより形成されるが、窒化ボロン、アルミナ等のセラミックスや、Ti、Al、Cuなどの金属により形成しても良い。

【0028】本発明第3の実施形態の有機EL素子製造装置は上記のような構成とされており、2つの蒸発源30b、30cから同時に有機材料を蒸着することで、搬送されている基板11表面に傾斜有機層を再現性よく成膜する。

【0029】ここで、成膜される傾斜有機層と蒸発源30b、30cとの関係について説明する。蒸発源となる有機化合物は蒸発源30の収納部33内に充填した後、筒体31内に嵌合され、ヒーター34により加熱されて開口部32から飛散する。このとき指向範囲制御部32bが飛散する蒸着物の範囲を制御すべく法線方向に対し、例えば33°の角度で、孔32aからの長さ1cmとして設けられているので、蒸着物の飛散範囲を約66°の範囲内に制御することができる。このように飛散範囲を所定角度に制御した蒸発源30b、30cを成膜室22bの下方に指向角度を調整して固定する。基板11上における蒸発源30bによる蒸発範囲をB、蒸発源30cによる蒸発範囲をCと図示する。蒸発源30b、30cの取り付け角度、取り付け位置および開口部32

(孔32aおよび指向範囲制御部32b)を調整することにより、上述したような傾斜構造の有機層を形成できる。例えば図13では図面左側から搬送されてきた基板11上に、蒸発範囲Bのみの位置においては蒸発源30bによる蒸着物が成膜され、続いて右側に移動して蒸発範囲BおよびCが重なる位置においては両蒸発源30b、30cからの蒸着物が同時に蒸着され、最後に蒸発範囲Cのみの位置で蒸発源30cからの蒸着物のみが成膜される。このとき各蒸発源から基板上に到達する蒸着物の量が蒸発源の蒸着範囲の周辺部に向かうにしたがって蒸着量の少なくなるものとすれば、連続して混合比を変化する傾斜構造を作製することができる。特に所定角度に傾けた蒸発源を用いるので、蒸発源からの距離を大

きくして異なる蒸発源からの蒸発範囲が重なる領域を利用して傾斜有機層を作製する場合に比べて、製造装置の大きさをコンパクト化することができ、装置のコストおよび設置スペースコストを低減することができ得る。なお、符号Zで示すものは蒸着物の成分混合の境界線である。

【0030】このような蒸発源30を設けた成膜室と一定方向に移動する基板11とを備えた有機EL素子製造装置21とすることで、作製しようとする傾斜構造の有機EL素子を再現性よく、しかも簡単に作製することができる。なお、本実施形態において、蒸発源30は1つに限定されず、2つ以上の蒸発源が配置されていてもよい。また、傾斜構造の有機層を作製する成膜室も、同様に一つに限定されず複数設けられていてもよい。

【0031】次に、第4の実施形態について説明する。なお、先の実施形態と同一の機能を有する箇所は同一の符号を付し詳細な説明を省略する。本実施形態においては、蒸発源からの蒸発物の飛び出し量を制御した複数の蒸発源を並設することにより、傾斜有機層を作成している。図15および図16は本発明による好適な傾斜型構造の有機EL素子10(図10を参照)を成膜する蒸発源部の説明図である。本発明においても傾斜型構造の有機EL素子10は、いわゆるインライン方式の真空成膜装置を用いて作製する。インライン方式の真空成膜装置は、例えば一定速度で基板11が移動する機能を有し、複数の蒸発源30を有する成膜室22と、排気装置26により構成されている。また、成膜室の前後にロードロック室28a、28bが設けられている。蒸発源30は飛び出し方向に指向性を持って蒸発物が飛散するものとされ、少なくとも2つの蒸発源からの蒸発物が基板11上に同時に成膜するものとされている(図12参照)。

【0032】図面において符号11は基板で、図面左から右方向に向かって所定の速度で移動する。成膜室22には複数の蒸発源を備えており、搬送されてくる基板11表面に成膜する。例えば第1成膜室22aにて蒸発源30aによりホール注入層、第2成膜室22bにおいて蒸発源41および蒸発源42により傾斜有機層、第3成膜室22dにおいて蒸発源30dにより陰極材料をそれぞれ成膜する。各成膜室において成膜する材料、蒸発源の数および成膜室の数は、作製しようとする有機EL素子構造に応じて適宜選択する(図12、15参照)。

【0033】第2成膜室22bの下部には、2つの輻射加熱方式の長尺の蒸発源41、42が長手方向が基板移動方向と平行になるように並設され、第1蒸発源41による蒸発物と第2蒸発源42による蒸発物が基板11上で同時に蒸着されるように、図15(B)に示すように基板法線方向に対して僅かに傾斜して設置している。なお、基板11は図15(A)においては紙面左側から右側に、図15(B)においては紙面に対して奥側から手前側に向かって移動する。また、蒸発源41および42



は図15(A、B)に示したように、所定の量の蒸発物を収納する函体43と、函体43の開口部を覆う蓋44、45と、函体43の周囲に設けられた温度を制御するヒーター46とにより構成され、蓋44、45には所定の大きさとした複数の孔47、48が設けられている。第1蒸発源41の蓋44には、基板11が移動するに従って径がしだいに小さくなる孔47aから47fが設けられ、第2蒸発源42の蓋45には、基板11が移動するに従って逆に径がしだいに大きくなる孔48aから48fが設けられている。なお、これらの蒸発源は好適にはカーボンにより形成されるが、窒化ボロン、アルミナ等のセラミックスや、Ti、Al、Cuなどの金属により形成しても良い点は第3の実施形態と同一である。また、図16に示すように孔47、48の間隔を徐変するものとしても良い。

【0034】本発明第4の実施形態の有機EL素子製造装置は上記のような構成とされており、2つの蒸発源41、42から同時に有機材料を蒸着することで、搬送されている基板11表面に傾斜有機層を再現性よく成膜することができる。

【0035】ここで、成膜される傾斜有機層と蒸発源41、42との関係について説明する。蒸発源となる有機化合物は蒸発源41、42の蓋44、45に設けられた各孔47、48を通して基板11上に到達する。このとき第1蒸発源41において、孔47aの飛散量に比べて47fの飛散量は小さい。そのため、基板11上に到達する蒸発物は基板11の移動に伴って低減する。逆に第2蒸発源42においては孔48aの飛散量に比べて48fの飛散量が大きいため、基板11上に到達する蒸発物は基板11の移動に伴って増加する。蒸発源41、42の取り付け角度、取り付け位置および孔47、48の間隔と大きさ等を調整することにより、上述したような傾斜構造の有機層を形成できる。また、蒸発源と基板までの距離を適宜離間することで基板上に形成される有機層の均一性を向上させている。

【0036】このような蒸発源41、42を設けた成膜室と一定方向に移動する基板11とを備えた有機EL素子製造装置とすることで、作製しようとする傾斜構造の有機EL素子を再現性よく、しかも簡単に作製することができる。なお、本実施形態においても、蒸発源は2つ以上を配置していてもよい。また、傾斜構造の有機層を作製する成膜室も、同様に一つに限定されず複数設けられていてもよい。また、各蒸発源41、42は夫々一つの函体43に複数の孔47または孔48を設けた蓋44、45を被着するものとしているが、これに限らず、例えば蒸発源41を各孔47a、47b、47c、47d、47e、47fに対応した複数の個別に制御可能な独立の蒸発源として、一列に並べたものを用いる等の分割蒸発源を蒸発源として用いることもできる。

【0037】また、第3および第4の実施形態において

も、第1および第2の実施形態のように位置調整可能な仕切り板や、防着板、囲み板を設けることもできる。基板11としては板材でもフィルムでも良く、ガラス、プラスチック、など絶縁体に陽極として機能する薄膜を形成させたものを用いることができる。蒸発方法は、加熱蒸発(抵抗加熱、EB加熱)、スパッタ蒸発などいずれでもよい。

【0038】また、今までの説明は水平方向に基板が移動するいわゆる横置ききの装置の例を示したが、基板を縦置きとした場合、基板を背中合わせにして2枚重ねて搬送するものとし、その両側に成膜室を配置して側面から蒸着材料を飛ばすものとしてもよい。これにより、2枚の基板を同時に成膜できるようになり、1枚送りに比べて、処理能力を2倍にすることができる。

【0039】傾斜有機層としてホール輸送性材料と電子輸送性材料の各1種類を所定の濃度勾配を持つように作製する例にて説明したが、これに限るものではなく、3種類以上の材料を用いて傾斜有機層を形成するものとしてもよい。さらに積層型有機EL素子において隣り合う2層であれば、ほかの層との組み合わせにおいても作製可能である。

【0040】

【実施例】傾斜構造を持つ有機EL素子の作製装置の実施例を以下に説明する。基板は200mm×200mmのIndium tin oxide(ITO)付きガラスを用いた。作製した素子の構造は、ホール注入層/傾斜構造層/電子注入層/陰極層とした。装置は、図1のようなインライン装置を用いて作製した。基板は第1成膜室2a側から入れ、速度1.3mm/sで搬送され、第4成膜室2d側から出す。

【0041】第1成膜室2aで、銅フタロシアニンの薄膜を作製し、ホール注入層を形成する。次に、第2成膜室2bで、図7に示すような分子構造を持つホール輸送性材料N,N'-di(1-naphthyl)-N,N'-diphenyl-[1,1'-biphenyl]-4,4'-diamine( $\alpha$ -NPD)と、図8に示す電子輸送性材料(発光材料を兼ねる)tris(8-hydroxyquinoline)aluminum(Alq3)を用いて傾斜構造層を形成する。第2成膜室2bの内部構造は図2のように成っている。蒸発速度は、傾斜構造層の膜厚が2000Åとなるように調整した。次に、第3成膜室2cでLi薄膜を作製し、電子注入層形成した。最後に、第4成膜室2dで陰極Alを成膜した。

【0042】また、リファレンスとして $\alpha$ -NPDを1000Åと、Alq3を1000Åの厚みで順に積層した以外は同一の工程で成膜して有機EL素子を作製した。

【0043】両素子のELスペクトルを図9に示す。この図は実施例サンプルQ、および、リファレンスサンプルRのいずれもがAlq3に基づく発光スペクトルを示しており、基本的な発光特性において変わりのない傾斜有機層を備えた有機EL素子10が得られている。

## 【0044】

【発明の効果】効果1：従来法では、濃度勾配を形成させるためには、蒸発速度を逐次変化させる制御が必要となる。一方、本発明では蒸発速度を一定に保ちながら、基板を移動させることにより、濃度勾配を形成する。水晶振動子での膜厚モニターによる蒸発速度制御は、蒸発速度を一定時間保持する制御は容易であるが、蒸発速度を逐次変化させる制御は、現技術では困難である。したがって、本発明では濃度勾配パターンの再現性が高くなるという効果がある。

【0045】効果2：従来のクラスター型蒸着装置は、傾斜構造を持つ膜の膜厚を変更する場合、蒸発速度を時間とともに変化させる条件、すなわち、初期速度、最終速度、および、速度勾配、を決め直さなければならない。また、水晶振動子での膜厚モニターによる蒸発速度制御のため、速度を逐次変化させる制御は困難である。したがって、このような従来法では、生産レベルで膜厚を変えることは困難である。一方、本発明では、設定した蒸発速度や基板の移動速度を変えるだけで膜厚を容易に変えることができる。また、蒸発源の仕切り板の高さや蒸発源を変えれば、濃度勾配も容易に変えられる。

【0046】効果3：従来は、膜厚の均一な膜を得るために、基板を自転させていた。また、基板を交換する毎に、搬送時間が必要であった。一方、本発明の方法を用いると、インライン方式なので、搬送時間が大幅に短縮され、基板の自転に要する時間も不要となる。したがって、本発明には薄膜作製の処理能力が高くなるという効果がある。

【0047】効果4：一般に、真空蒸着法を用いた場合、蒸発した材料の内、基板に膜として使われる割合は1割以下である。大部分の蒸発した材料は、真空容器の内壁に付着してしまう。これは、蒸発方向に指向性が無いためである。一方、本発明の加熱された板を蒸発源周囲に置く方法を用いると、蒸発方向が制限できる。したがって、本発明では蒸発材料の使用効率が高くなるという効果がある。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置および製造方法の実施形態を示す略示的な断面図である。

【図2】 同じく本発明に係る製造装置および製造方法の要部である傾斜構造層を形成するための成膜室を示す略示的な断面図である。

【図3】 本発明により形成可能な傾斜構造層の例を示すグラフである。

【図4】 傾斜構造層を形成するときの仕切り板および防着板の作用を示す説明図である。

【図5】 傾斜構造層を形成するための成膜室の別な実施形態を示す説明図である。

【図6】 傾斜構造層を形成するための成膜室の更に別

な実施形態を示す説明図である。

【図7】 実施例で用いた有機材料  $\alpha$ -NPD の分子構造を示す構造式である。

【図8】 実施例で用いた有機材料 Alq3 の分子構造を示す構造式である。

【図9】 本発明に係る製造装置および製造方法により形成された有機EL素子の発光スペクトルを示すグラフである。

【図10】 傾斜構造を有する有機EL素子の構成を示す断面図である。

【図11】 傾斜構造層の濃度勾配を示すグラフである。

【図12】 本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子の製造装置の他の実施形態を示す略示的な断面図である。

【図13】 図12の製造装置および製造方法の要部である傾斜構造層を形成するための成膜室を示す略示的な断面図である。

【図14】 傾斜構造層を形成するための蒸発源の実施形態を示す説明図である。

【図15】 傾斜構造層を形成するための蒸発源の別の実施形態を示す説明図である。

【図16】 図16の蒸発源を用いて傾斜構造層を形成する製造装置及び製造方法の要部を示す説明図である。

【図17】 従来例の製造装置を示す説明図である。

【図18】 従来例の製造装置の要部を示す説明図である。

## 【符号の説明】

1, 21 ……有機EL素子の製造装置

2, 22 ……成膜室

3, 30 ……蒸発源

4, 34 ……ヒーター

5, 25 ……仕切り板

6, 26 ……排気装置

7, 27 ……膜厚モニター

8 ……防着板

9 ……囲み板

10 ……有機EL素子

11 ……基板

12 ……陽電極

13 ……有機層

14 ……陰電極

15 ……囲周板

2e ……搬送室

28 ……ロードロック室

30 ……蒸発源

31 ……筒体

32 ……開口部

32a ……スリット

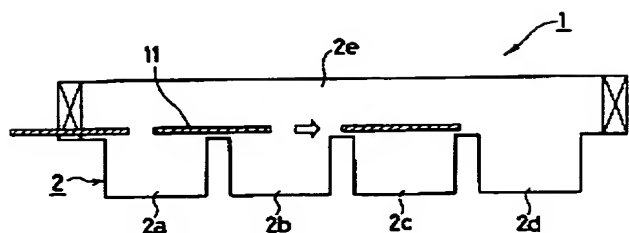
32b ……指向範囲制御部



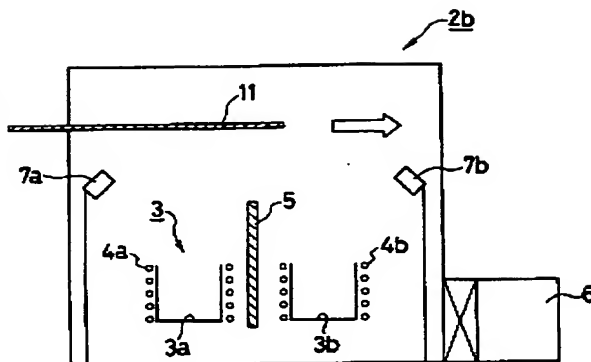
3 3 ……収納部  
3 4 ……ヒーター  
4 1, 4 2 ……蒸発源  
4 3 ……函体

4 4, 4 5 ……蓋  
4 6 ……ヒーター  
4 7, 4 8 ……孔

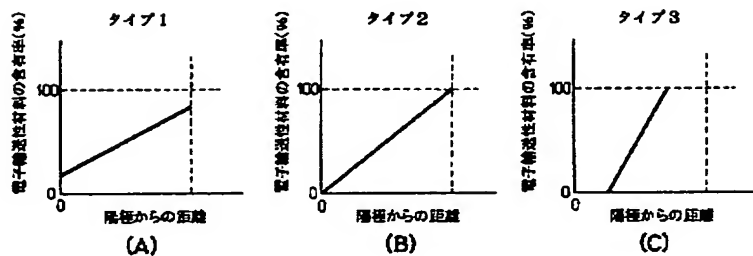
【図1】



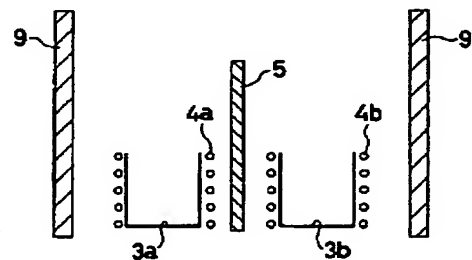
【図2】



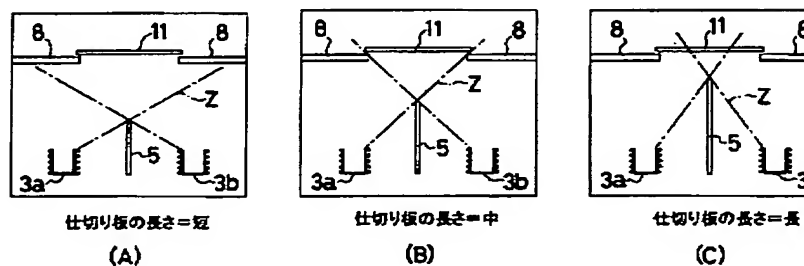
【図3】



【図6】

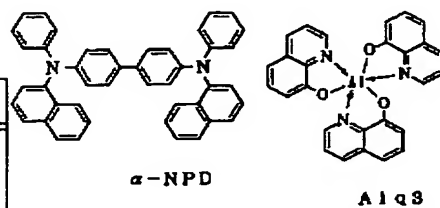


【図4】

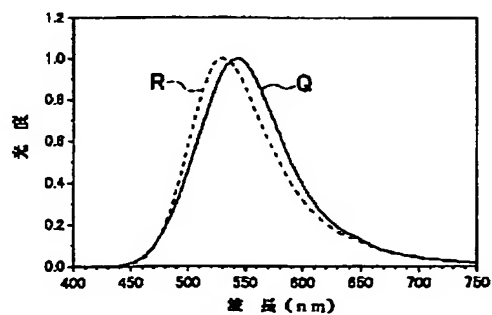


【図7】

【図8】

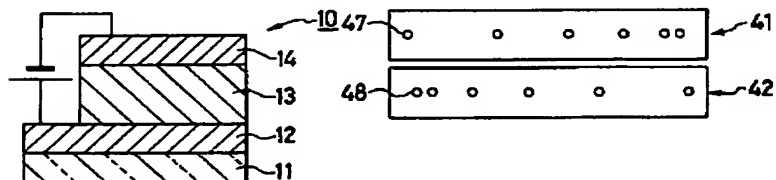


【図9】

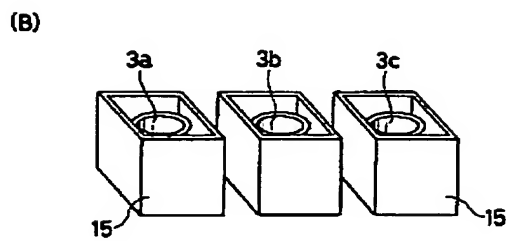
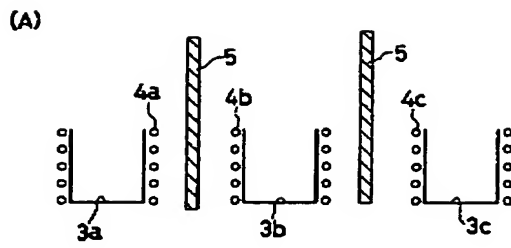


【図10】

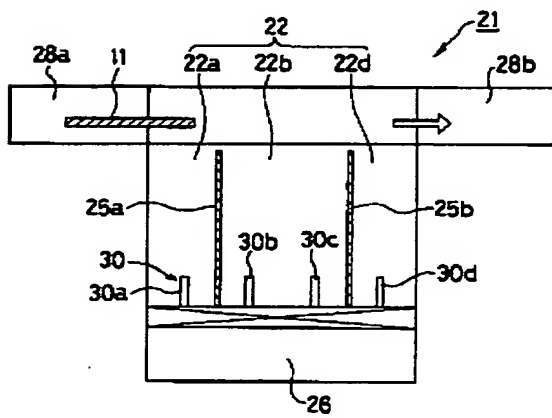
【図16】



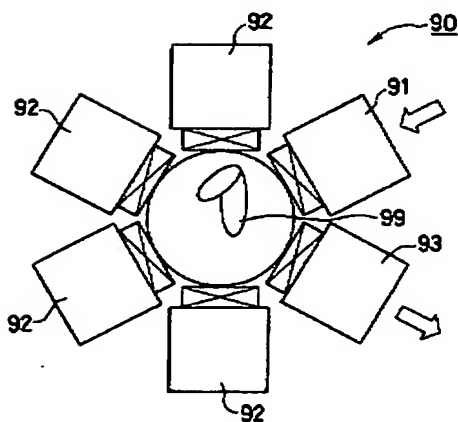
【図5】



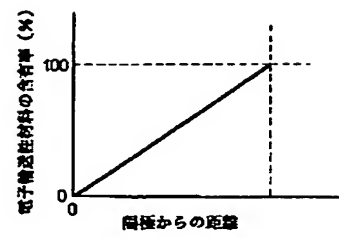
【図12】



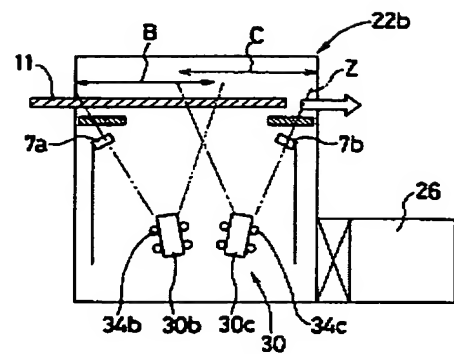
【図17】



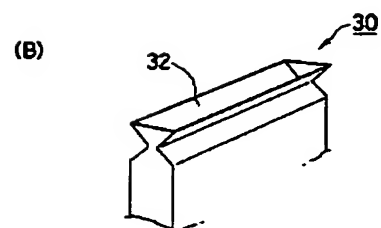
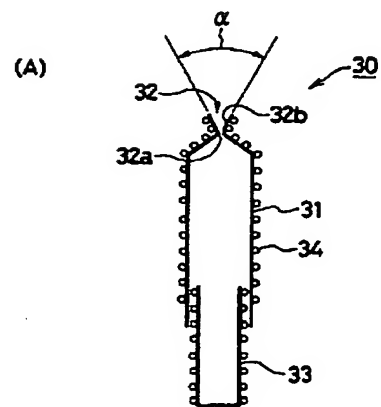
【図11】



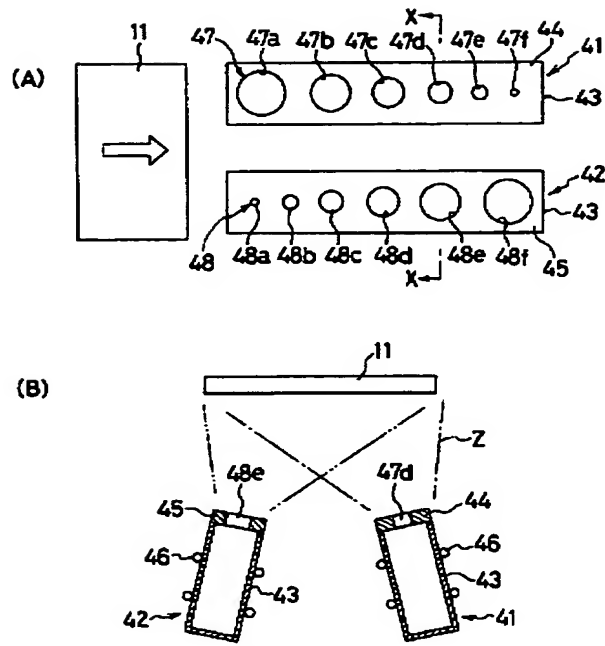
【図13】



【図14】



【図15】



【図18】

